

# Über die massenspektroskopische Trennung und optische Untersuchung der Silber- und Kupferisotope

## Inaugural-Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades  
der Philosophischen Fakultät  
der Philipps-Universität zu Marburg

vorgelegt von

Rudolf Martin

aus

Neusalz/Oder



Marburg (D4) 1952.

Als Dissertation angenommen am: 17. 7. 1952

Berichterstatter: Professor Dr. W. Walcher

Mitberichterstatter: Professor Dr. S. Flüge

Tag der mündlichen Prüfung: 23. 7. 1952

---

Gedruckt mit Genehmigung der Fakultät.

Diese Dissertation erscheint auch in:  
Marburger Sitzungsberichte, 75. Band, 1952, S. 5 bis 25.

# Über die massenspektroskopische Trennung und optische Untersuchung der Silber- und Kupferisotope

## 1. Einleitung

Eine ganze Anzahl von Fragestellungen der Kernphysik kann nur eindeutig beantwortet werden, wenn getrennte bzw. angereicherte Isotope bei den Versuchen verwendet werden. Unter diesen Problemen nehmen die optischen Hyperfeinstruktur- (HFS-) Untersuchungen, welche Aufschluß über Kernspin, magnetisches Kernmoment und Kernquadrupolmoment geben, eine hervorragende Stelle ein. Insbesondere waren es zwei Probleme, die den Gegenstand dieser Arbeit bilden: 1) Die sehr sorgfältig mit Hilfe der Atomstrahltechnik ausgeführte HFS-Analyse der Ag I-Resonanzlinien [1] führte zu Ergebnissen hinsichtlich der Isotopie-Verschiebung, welche in dieser Gegend des periodischen Systems im Widerspruch zu den geltenden Anschauungen standen. Eine Klärung und damit eine Entscheidung für oder gegen die zu Grunde gelegten theoretischen Ansätze war nur bei Verwendung getrennter Isotope möglich. 2) Die Isotopieverschiebung im Kupferspektrum ist wegen der mit dem relativ kleinen Atomgewicht verbundenen großen Linienbreite der Messung nur schwer zugänglich. Während für die Resonanzlinien Atomstrahlversuche ausreichender Genauigkeit von Brix und Humbach [2] vorliegen, sind die Ergebnisse von Ritschl [3] an einer größeren Zahl von Komplextermen mit großer Unsicherheit behaftet. Auch hier versprach die Verwendung getrennter Isotope eine Klärung des Tatbestandes.

Zur Trennung der Ag- und Cu-Isotope stand der von Walcher [4] konstruierte Trennspektrograph zur Verfügung. Schwierigkeiten in der Beschaffung von Ersatzteilen für die alte Ionenquelle [5] gaben den Anlaß zu einer

Neukonstruktion der Ionenquelle unter Verwendung eigener und fremder Erfahrungen. Daher soll zunächst über den Aufbau und die Betriebseigenschaften dieser neuen Ionenquelle berichtet werden. Im Anschluß daran werden Erfahrungen über das Auffangen von Ionen im Hinblick auf die spektroskopische Verwendung mitgeteilt werden. Schließlich werden spezielle Angaben über die Trennung der Ag- und Cu-Isotope gemacht und über deren optische Untersuchung berichtet.

## 2. Ionenquelle

### a) Neukonstruktion der Ionenquelle

Die bisher verwendete Ionenquelle [5] beruht auf der Ionisierung eines Atomstrahls durch ein stromstarkes Elektronenbündel; dabei durchläuft jedes Elektron den Stoßraum nur einmal. Wie bereits Heil [6] gezeigt hat, ist es möglich, den Elektronenwirkungsgrad bis auf  $10^{-1}$  heraufzusetzen, wenn man die Elektronen mehrmals durch den Atomstrahl „pendeln“ läßt. Man erreicht dies, indem man die Elektronen nach Durchlaufen des Atomstrahls durch ein elektrisches Gegenfeld zur Umkehr zwingt und, um das Elektronenbündel zusammenzuhalten, die Ionenquelle in ein Magnetfeld bringt. Ionenquellen dieses Types haben bereits erfolgreiche Verwendung gefunden [7].

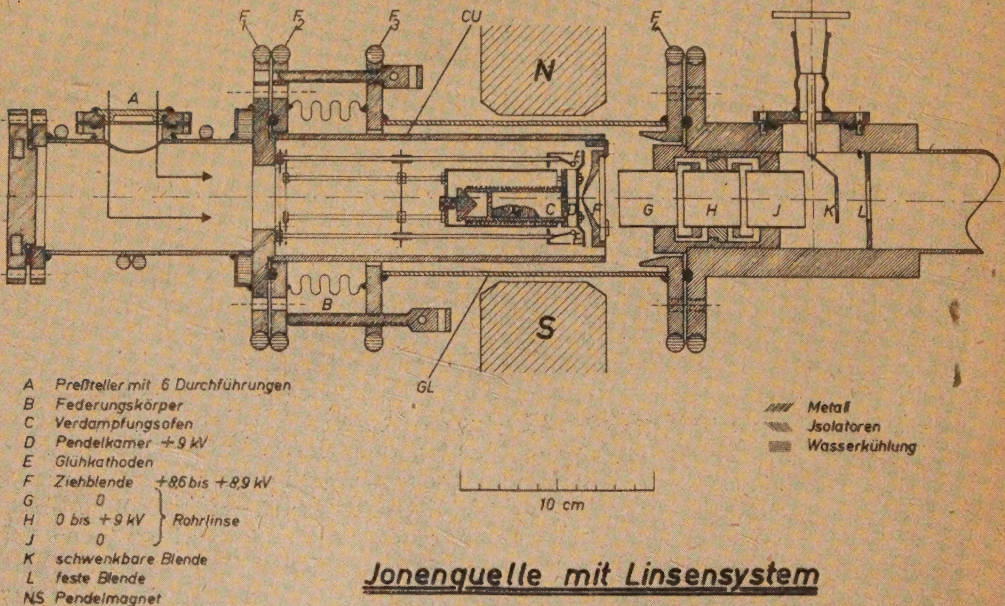


Fig. 1: Konstruktion der Ag-Ionenquelle.

Steigert man in einer solchen Anordnung die Dampf- (Gas-) und Trägerdichte, so erhält man eine Art magnetisch stabilisierten Niedervoltbogen. Die hohe Ionendichte im Plasma dieser Entladung gestattet es, ohne Schwierigkeiten einen Ionenstrom bis zu einigen mA aus der Ionenquelle zu entnehmen. Bernas und Nier [8] haben eine derartige Anordnung für die Trennung der Zn-Isotope verwendet.

Zum Betrieb eines solchen Niedervoltbogens ist im Entladungsraum ein Druck von  $10^{-3}$  bis  $10^{-2}$  torr erforderlich. Um diesen Druck zu erhalten, müssen Verdampfungsöfen und Entladungsraum für Ag auf eine Temperatur von 1000 bis 1100° C, für Cu auf 1200 bis 1300° C gebracht werden. Somit ergeben sich für die Neukonstruktion der Ionenquelle die folgenden Gesichtspunkte: 1) Sowohl Ofenraum als auch Entladungskanal müssen im Dauerbetrieb auf 1100 bzw. 1300° C erhitzt werden können. 2) Der Ofenraum muß groß genug sein, um genügend Verdampfungsmaterial darin unterbringen zu können. 3) Zur vollen Ausnutzung des aus dem Ofenspalt austretenden Metaldampfstrahls muß der Entladungskanal unmittelbar an den Ofenspalt angrenzen. 4) Der Entladungskanal muß — abgesehen von den Elektroneneintritts- und Ionenaustrittsöffnungen — möglichst abgeschlossen sein, um die „ungenutzte Verdampfungs menge“ klein zu machen. 5) Die ganze Ionenquelle muß aus unmagnetischen und temperaturbeständigen Werkstoffen bestehen. 6) Die Ionenquelle muß einen guten Strahlungsschutzmantel besitzen, damit die zugeführte Leistung klein und der Kühlaufwand gering werden.

Die nach diesen Gesichtspunkten ausgeführte Ag-Ionenquelle ist in Fig. 1 dargestellt. Das Kopfstück, das den Pendelkanal D enthält, ist aus einem Stück V2A-Stahl herausgearbeitet. In seine Rückseite ist eine Nut eingedreht, in welche der Korundofen C eingepaßt und durch eine Verschraubung angedrückt ist. C kann durch eine Wo-Heizwicklung auf die erforderliche Temperatur gebracht werden. Damit das Ag nicht im Kopfstück kondensiert, muß auch dessen Temperatur über dem Schmelzpunkt des Ag (960,5° C) liegen; daher sind zu beiden Seiten des Pendelkanals Bohrungen angebracht, in die Heizelemente eingeschoben werden können. Der Pendelkanal wird von einem Mo-Blech abgedeckt, in welchem sich der „Ionenquellenspalt“ befindet. Er hat die Form eines kreisrunden Loches von 2 mm  $\phi$ . Die trichterförmige Ziehblende F besorgt das Herausziehen der Ionen aus dem Entladungsraum.

Der in der Pendelkammer benötigte Elektronenstrom von ca. 100 mA wird von 2 Glühkathoden E geliefert, welche an beiden Enden des Pendelkanals angeordnet sind. Zur Führung der Elektronen im Pendelkanal ist außerhalb der Vakuumkammer der Elektromagnet NS über die Ionenquelle geschoben. Um die Wärmestrahlung des Ofens nach außen herabzusetzen, ist der Verdampfungsöfen von einem Strahlungsschutzblech umgeben. Über Ofen, Kopfstück und Kathoden wird ferner ein Kupferrohr CU (Wandstärke 3 mm) geschoben und mit dem wassergekühlten Flansch  $F_1$  durch ein 20 mm langes Gewinde in gut wärmeleitende Verbindung gebracht. Der gesamte innere Aufbau der Ionenquelle ist gegen dieses Rohr elektrisch isoliert, so daß auf seiner vorderen Öffnung die Ziehblende befestigt werden kann. Da die Wärmeabstrahlung der Ionenquelle auf diese Weise äußerst gering gehalten werden kann, ist es möglich, als Isolator der auf Hochspannung liegenden und den auf niedrigem bzw. Erd-Potential liegenden Teilen ein Glasrohr Gl zu verwenden, welches in die Flansche  $F_3$  und  $F_4$  eingekittet wird.

Die Cu-Ionenquelle unterscheidet sich von der Fig. 1 nur durch stabileren Aufbau, stärkere Kühlung und einem aus Ta-Blech gebogenen und geschweißten Pendelraum. Außerdem erwies es sich als zweckmäßig, in den Sinterkorundofen einen Einsatz aus Graphit einzubringen. Dieser besitzt nur ein Loch von 2 mm  $\phi$  als Austrittsspalt für den Atomstrahl; dadurch wird ein Auslaufen des Kupfers aus dem Ofen vermieden und außerdem das geschmolzene Kupfer von allen Metallteilen (Legierungsbildung!) ferngehalten. Um eine Reduktion des  $\text{Al}_2\text{O}_3$  durch den Graphit zu vermeiden, mußte der Graphittiegel mit dünnem Ta-Blech sorgfältig umkleidet werden.

Der maßstäbliche Aufbau des gesamten Beschleunigungssystems ist ebenfalls aus Fig. 1 zu erkennen, die Spannung der einzelnen Elektroden F, G, H, I ergibt sich aus der Erläuterung der Fig. 1.

Unmittelbar hinter die Rohrlinse kann durch Drehen eines Schliffes ein Schirm K in den Strahlengang gedreht werden. Dieser Schirm dient einerseits dazu, um den Ionenstrom vor dem Eintritt in das Magnetfeld zu messen. Andererseits zeigte es sich, daß man mit Hilfe dieses Schirmes eine Raumladungskompensation erreichen kann: Der Schirm hat ein Loch von 10 mm  $\phi$ , das mit einem Molybdän-Drahtnetz von  $2 \times 2$  mm Maschengröße bespannt ist. Die an dem Netz und dem Lochrand ausgelösten Sekundärelektronen laufen rückwärts in die Linse und das Ziehfeld hinein und setzen die Raumladung (RL) herab. Die defokussierende Wirkung der RL wird verringert, so daß der Strom auf dem Auffänger um den Faktor 2 bis 10 gesteigert werden kann.

Auf dem schwenkbaren Schirm K werden gut fokussierbare d. h. am Ende des Spektrographen mit guter Auflösung trennbare Bündelströme von 50 bis 70  $\mu\text{A}$  Ag-Ionen (9 kV) und 400 bis 600  $\mu\text{A}$  Cu-Ionen (15 kV) gemessen.

#### b) *Einfluß des Betriebszustandes der Ionenquelle und des Restgasdruckes in der Apparatur auf Auffängerstrom und Auflösung*

Der Betriebszustand der Ionenquelle muß so eingestellt werden, daß über möglichst lange Zeiträume hinweg die Auffänger einen möglichst großen und möglichst gut aufgelösten Ionenstrom erhalten, Forderungen, die wir als „Trenngüte“ bezeichnen wollen. Diese Trenngüte hängt von vielen Parametern mehr oder weniger empfindlich ab.

Von Wichtigkeit sind zunächst die Ziehspannung, die Linsenspannung und die geometrische Anordnung der Ziehblende; die günstigsten Werte hierfür wurden in Vorversuchen ermittelt und während der ganzen Trennung festgehalten. Entscheidender für die Trenngüte sind aber die betriebsveränderlichen Parameter: Kathoden- und Ofenheizung, Pendelfeld und Restgasdruck. Sie beeinflussen sich sogar gegenseitig, daher ist es nötig ihre Zusammenhänge zu kennen, um den Betriebszustand laufend auf den „Bestwert“ der Trenngüte nachregeln zu können. Dies ist vor allem auch deshalb nötig, weil durch Netzspannungsschwankungen und die Zerstäubung des Kathodendrahtes Betriebsschwankungen unvermeidlich sind.

Zur Beurteilung der Trenngüte können folgende Kenngrößen dienen:

1. Der Ionenstrom auf den Schirm K (Fig. 1)  $I_K$
2. Der Ionenstrom auf den Leuchtschirm am Ausgang des Magnetfeldes  $I_L$
3. Der Ionenstrom im  $^{63}\text{Cu}$ -Auffänger  $I_{63}$

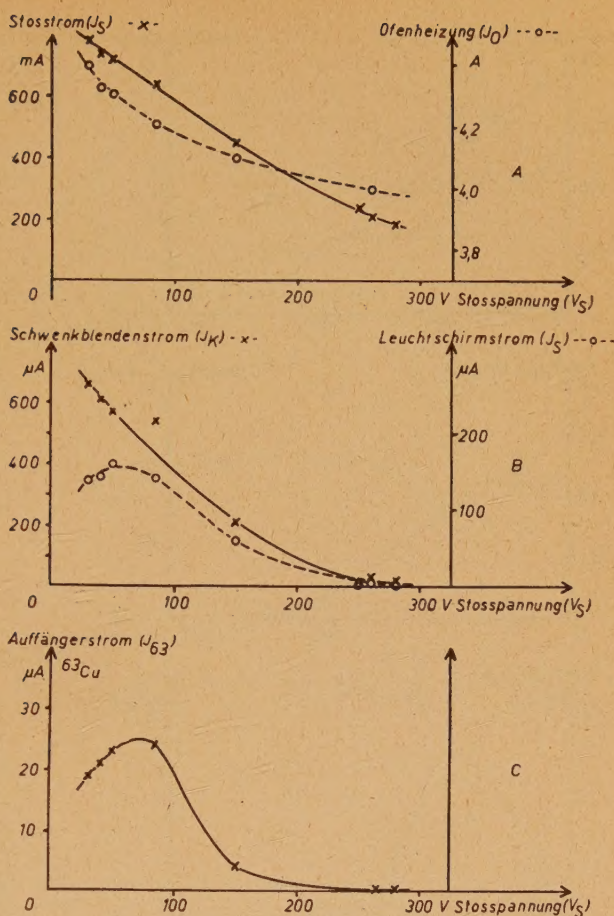


Fig. 2:

Änderung einiger Kenngrößen der Trennung mit der Ofenheizung. Kathodenheizung konstant  $I_H = 1,22$  Amp, Restgasdruck konstant  $p_r = 8$  bis  $4 \cdot 10^{-5}$  torr (McLeod), Magnetfeld  $B = 430$  Gauß,  $I_H$  und  $I_O$  auf der Primärseite der Heiztransformatoren gemessen.

Die Ionenstrommessungen sind sämtlich ohne Gegenspannung für Sekundärelektronen ausgeführt, so daß die Werte für  $I_K$  und  $I_L$  etwa um den Faktor 2 zu groß sind. Die Töpfchenform des Cu-Auffängers (vgl. Abschn. III) kommt einem Faraday-Käfig schon sehr nahe, so daß dort die Verfälschung der Ionenstrommessungen durch Sekundärelektronen geringer sein dürfte.

#### 4. Das Auflösungsvermögen A.

Es wird für den vorliegenden Zweck definiert als Verhältnis des Auffängerstrommaximums von  $^{63}Cu$  zum Minimum zwischen  $^{63}Cu$  und  $^{65}Cu$ . Zur Messung dieser Extremwerte wurde durch Änderung des Magnetstroms nacheinander das Maximum von  $^{63}Cu$  und das Minimum zwischen beiden Isotopen auf das Auffängertöpfchen von  $^{65}Cu$  eingestellt. Auf diese Weise erhält man zwar nur sehr rohe Werte, die aber doch eine Aussage über die Güte der Fokussierung gestatten. Die Angabe  $A = 1,4$  bedeutet, daß zwischen beiden Isotopen kein Minimum gemessen wird, also schlechte Auflösung. A-Werte über 3 deuten auf gute Auflösung, während A-Werte über 7 sehr gute, meist zufällige und schlecht reproduzierbare, Auflösung angeben.

Die Messungen wurden an der Cu-Ionenquelle ausgeführt; die Ergebnisse sind in den Fig. 2 bis 5 dargestellt.

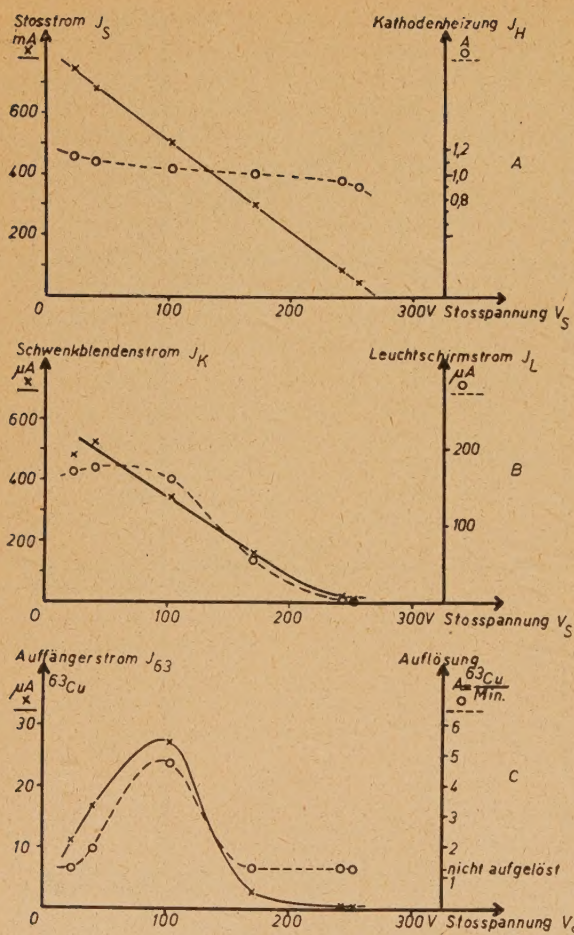


Fig. 3:

Änderung einiger Kenngrößen der Trennung mit der Kathodenheizung. Ofenheizung konstant  $I_{Ofen} = 4,40$  Amp sonst wie Fig. 2.

a) Der Einfluß des Cu-Dampfdruckes (Fig. 2) wurde ermittelt durch Änderung der Ofenheizung, wobei alle anderen Betriebsgrößen konstant gehalten wurden; der Restgasdruck bewegte sich in dem für die Fokussierung günstigen Bereich von 8 bis  $4 \times 10^{-5}$  torr (McLeod-Messung). Mit steigender Ofenheizung bricht die Stoßspannung <sup>1)</sup>  $V_S$  wegen der wachsenden Atomdichte im Pendelraum immer mehr zusammen (Fig. 2 A). Gleichzeitig steigen Stoßstrom <sup>1)</sup>  $I_S$  und Ionendichte im Pendelraum, es werden immer mehr Ionen herausgezogen und der Strom  $I_K$  auf den Schirm K steigt stetig an (Fig. 2 B). Der Ionenstrom auf den Leuchtschirm  $I_L$  (Fig. 2 B) durchläuft ebenso wie der in das Töpfchen  $I_{63}$  (Fig. 2 C) ein Maximum, da bei zu großen Stromdichten das Bündel aus Raumladungsründen auseinanderläuft und der Auffängerstrom absinkt. Das Maximum des Auffängerstroms liegt bei etwa 70 V Stoßspannung. Einen ähnlichen Optimalwert für die Stoßspannung kann man auch aus den folgenden Dia-

<sup>1)</sup> Die Bezeichnungen Stoßstrom und Stoßspannung stammen von der plasmafreien Pendelquelle. Bei unserem Niedervoltbogen würde man besser Bogenstrom und Bogen-spannung sagen. Trotzdem werden die ersteren Schlagwörter beibehalten.

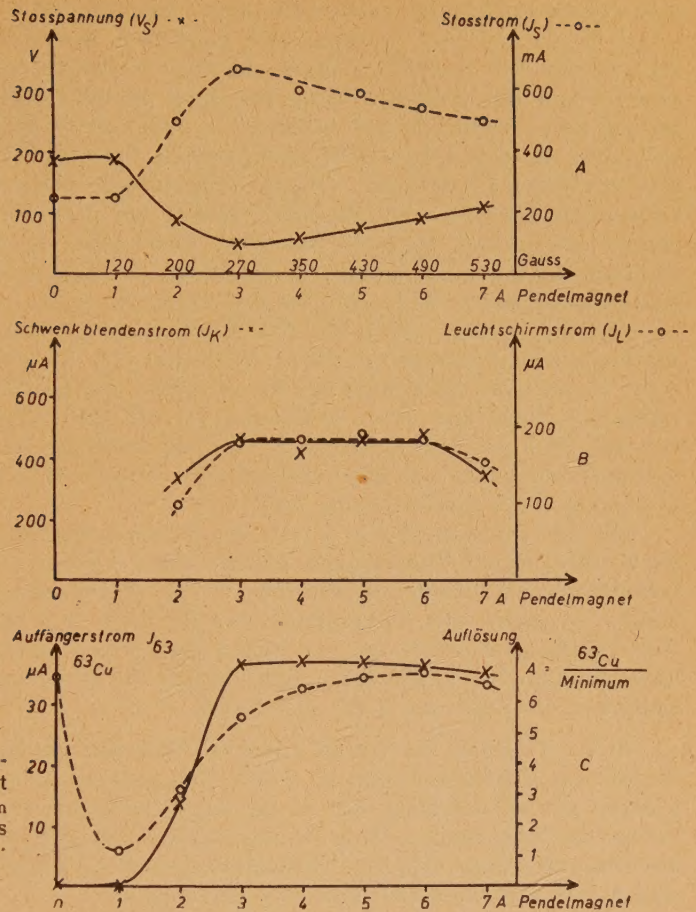


Fig. 4:

Änderung einiger Kenngrößen der Trennung mit dem Magnetfeld.  $I_{Ofen} = 4,35$  A;  $I_H = 1,22$  bis  $1,08$  A;  $p_r = 8$  bis  $4 \cdot 10^{-5}$  torr B = 430 Gauß.

grammen entnehmen. Es zeigt sich, daß es auf die Einstellung der Stoßspannung ziemlich genau ankommt, während der Stoßstrom (mit Hilfe des Vorwiderstandes) in gewissen Grenzen variiert werden darf.

b) Ähnliche Kurvenformen ergibt eine Veränderung der Kathodenheizung unter Konstanthaltung der anderen Parameter (Fig. 3). Man erkennt, wie stark sich schon geringe Schwankungen auf die Entladungsbedingungen auswirken und wie wiederum nur bei Stoßspannungen von etwa 90 V eine gute Auflösung und damit gleichzeitig ein hoher Ionenstrom im Auffängertöpfchen erreicht werden kann (Fig. 3 C). Anscheinend kommt es nur darauf an, eine bestimmte optimale Ionendichte im Pendelkanal aufrecht zu erhalten.

Aus den Diagrammen wird verständlich, wie es möglich war, während der Trennung durch Änderung der Kathodenheizung jeweils den größten Töpfchenstrom und damit die beste Auflösung einzustellen.

c) Bei der Veränderung des Pendelmagnetfeldes (Fig. 4) wurde bei jeder Messung die Kathodenheizung so eingestellt, daß der Auf-

fängerstrom ein Maximum erreichte. Fig. 4 A zeigt, daß bei Magnetströmen unter 1 Amp Stoßstrom und Stoßspannung praktisch konstant sind, daß zwischen 1 und 3 Amp der Stoßstrom stark ansteigt, während die Stoßspannung stark absinkt, und daß oberhalb 3 Amp sich diese beiden Größen nur langsam ändern. Daraus ist zu schließen, daß offenbar in dem Gebiet zwischen 1 und 3 Amp die Entladung in den magnetisch stabilisierten Niedervoltbogen übergeht, wobei sich ein Plasma ausbildet, dessen Trägerdichte oberhalb 3 Amp einen etwa konstanten Maximalwert annimmt, sofern bei Veränderung des einen Parameters ein anderer nachgeregelt wird. Dies geht aus Fig. 4 B und C hervor; oberhalb 3 Amp sind  $J_K$  und  $J_L$  bis oberhalb 6 Amp praktisch konstant und dementsprechend auch  $J_{63}$  und die Auflösung A.

Als günstigsten Wert für den Pendelmagnetstrom würde man aus dem aufgenommenen Diagramm einen Wert um 3 A bezeichnen, denn für diesen Wert erreicht die Stoßspannung ein Minimum bei gleichzeitig hohem Wert des Auffängerstroms und guter Auflösung. Da die Kathodenzerstäubung proportional der Energie der auftreffenden Ionen ansteigt, ist die Lebensdauer der Kathode und damit die Betriebsdauer des Trennspektrographen um so größer, je niedriger die Stoßspannung ist.

Bei der Silbertrennung waren die Pendelfeldstärken klein (etwa 200 bis 250 Gauß), die Stoßspannungen entsprechend niedrig (15 bis 30 Volt) und die Lebensdauer der Kathode erreichte 5 bis 10 Stunden. Bei der Cu-Trennung wurde — noch aus Unkenntnis der Sachlage — mit höheren Feldstärken (420 Gauß) gearbeitet, die (in bezug auf hohen Auffängerstrom) günstigste Stoßspannung lag wesentlich höher (50 bis 100 Volt) und die Lebensdauer der Kathoden erreichte nur 3 bis 5 Stunden.

d) In Abschnitt 2a wurde schon auf die Raumladungskompensation durch die an der Schwenkblende K (Fig. 1) ausgelösten Sekundärelektronen hingewiesen; sie ist allerdings nur in der Linse wirksam. Eine weitere RL-Kompensation auf dem langen Weg im Magnetfeld erhält man durch die Ionisierung des Restgases durch das Ionenbündel, was bereits L a w r e n c e [9] und B e r n a s und N i e r [8] festgestellt und ausgenutzt haben.

In Fig. 5 ist der Zusammenhang zwischen Größe des Auffängerstromes  $I_{63}$  und Auflösungsvermögen A einerseits und Restgasdruck andererseits dargestellt. Die Erhöhung des Restgasdruckes konnte in der Weise erreicht werden, daß von den zwei Hochvakuum-pumpen (Leybold, Modell E, Saugleistung 12 l/sec bei  $10^{-5}$  torr) die eine gedrosselt wurde. Die Druckmessung erfolgte mit einem Philipsmanometer. Die Ablesungen dieses Meßgerätes sind in Fig. 5 als Abszisse aufgetragen, für einige Werte sind die aus der Eichkurve entnommenen Drucke (Fehler wegen der Gaszusammensetzung!) neben den McLeod-Ablesungen (Fehler wegen kondensierbarer Dämpfe!) aufgetragen. Aus Fig. 5 C entnimmt man als günstigsten Druckbereich den Bereich um  $10^{-4}$  torr, gemessen mit dem Philipsmanometer. Sinkt der Druck ab, dann verschlechtert sich zunächst die Auflösung; erst dann sinkt auch der Auffängerstrom ab wegen der verschlechterten Fokussierung. Steigt hingegen der Druck über  $2 \times 10^{-4}$  torr (Philipsmanometer) an, dann beginnen die Streuung und die Schwächung des Ionenbündels durch Umladung und Ionisierung die RL-Kompensation zu überwiegen: Auffängerstrom und Leuchtschirmstrom sinken bei zunächst noch guter Auflösung ab, obwohl der Strom auf die Schwenkblende annähernd konstant bleibt. Diese Konstanz rührt daher, daß die Optimalwerte

der Betriebsparameter der Ionenquelle durch die Veränderung des Restgasdruckes in keiner Weise beeinflußt werden, was z. B. für Stoßstrom und Stoßspannung aus Fig. 5 A hervorgeht.

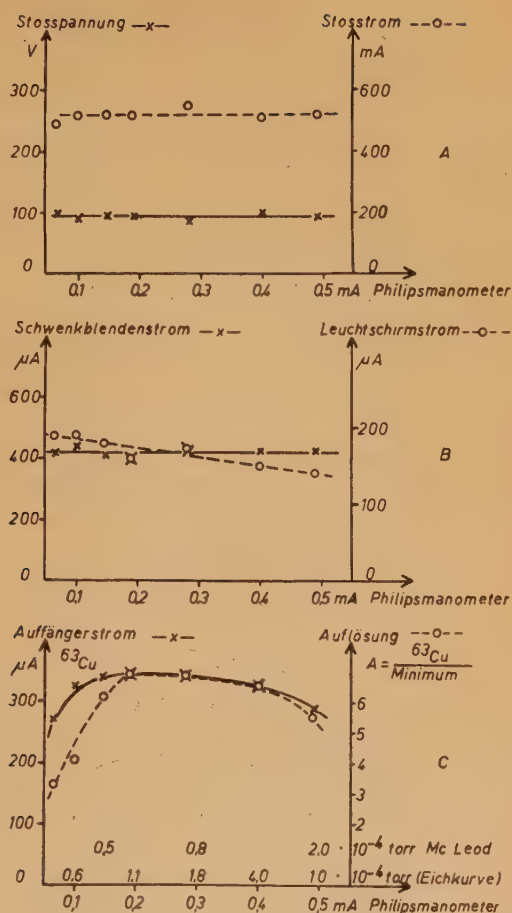
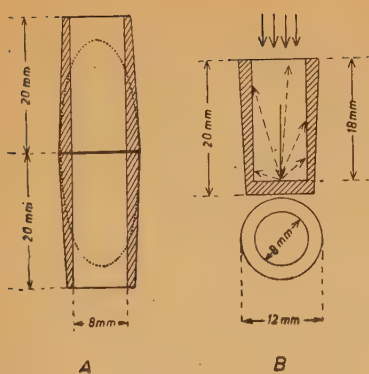


Fig. 5:  
Änderung einiger Kenngrößen der Trennung mit dem Restgasdruck. Sonstige Parameter wie Fig. 2 bis 4.

### 3. Auffangen der Isotope im Hinblick auf die optische Verwendung

Die Erzeugung der HFS-Spektren geschieht üblicherweise in einer gekühlten Hohlkathodenentladung. Es besteht daher die Aufgabe, die getrennten Isotope in die Hohlkathode zu bringen und mit möglichst kleinen Mengen (Milligramme oder Bruchteile davon) eine möglichst lichtstarke Spektrallinie bei langer Brenndauer zu erzeugen. Zur Lösung dieser Aufgabe können mehrere Wege beschritten werden.

Die Isotope können auf einer Folie oder einem Blech aufgefangen und die Folie nach entsprechender Verformung in die Hohlkathode gesteckt werden. Dieser Weg wurde von Walcher bei der Trennung der Tl-Isotope beschritten [10]. Der Vorteil der Folien besteht darin, daß man die Folie groß genug machen kann, um alle fokussierten Ionen zu erfassen. Der Nachteil liegt darin, daß durch Kathodenzerstäubung ein Teil des bereits vorhandenen Niederschlags durch die neu hinzukommenden Ionen wieder losgeschlagen wird und



außerdem beim Einlegen der Folie in die Hohlkathode der Wärmekontakt schlecht ist. Letzteres wirkt sich besonders bei leichteren Elementen in einer Vergrößerung der Doppelbreite sehr störend aus. Während beim Thallium wegen der hohen Massenzahlen (203 und 205) der störende Einfluß der schlechten Kühlung nicht wesentlich ins Gewicht fiel, mußte für Ag und Cu dem Rechnung getragen werden.

Fig. 6:

A: Schalenförmiger Auffänger in Auffangstellung. Punktierter ungefährer Umfang der „Linie“ eines Isotops. B: Zylinderförmiger Auffänger.

Die Kühlungsschwierigkeiten lassen sich wesentlich vermindern, wenn man einen leicht konischen Hohlkathodeneinsatz nach Fig. 6 B verwendet, der genau gepaßt ist und leicht ausgewechselt werden kann; er trägt eine Bohrung, welche die eigentliche Hohlkathode darstellt.

Schlitzt man diesen Einsatz der Länge nach auf und ordnet die so entstehenden Halbschalen wie in Fig. 6 A an, so kann man zwar den größten Teil des getrennten Isotops auffangen; die Zerstäubungsverluste sind aber etwa dieselben wie bei Verwendung eines ebenen Bleches. Demgegenüber können die Zerstäubungsverluste auf Prozente reduziert werden, wenn man die Ionen in Richtung der Bohrung in das Töpfchen Fig. 6 B hineinschießt; allerdings ist in diesem Fall die Auffängerfläche (Kreis von 8 mm  $\phi$ ) so klein, daß man aus diesem Grund Verluste hat. Bei dieser Art des Auffangens wird am Boden des Töpfchens jeweils eine Schicht aufgebaut und zusammen mit dem Grundmetall (Al) durch die folgenden Ionen sofort wieder zerstäubt. Das zerstäubte „Mischmaterial“ sammelt sich auf den Wänden des Töpfchens. Diese Art der Auffangung wurde bei der Rubidiumtrennung von Walcher [4], ferner von Smythe und Mitarbeitern [11] bei nichtoptischen Untersuchungen benutzt.

Eine völlig andere Auffangmethode benutzte Koch [12] zum Auffangen von Edelgasen. Die Ionen wurden mit 60 keV Energie auf Bleche geschossen, in deren Oberfläche sie etwa 100 Atomdurchmesser tief eindringen. Auf diese Weise werden etwa  $2 \mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$  auf dem Auffänger festgehalten. Nach Beendigung der Trennung werden die Auffängerbleche in ein Geißlerröhrchen eingeschmolzen und mit Hochfrequenzinduktion erhitzt, so daß die Gase wieder aus dem Metall in Freiheit gesetzt werden und zur optischen Untersuchung zur Verfügung stehen. Da bei unseren Trennungen nur Ionen von 10 bzw. 15 keV Energie verwendet werden konnten, ist die Menge der in die Auffängeroberfläche eingedrungenen Ionen vernachlässigbar gering (höchstens einige  $\mu\text{g}$  nach Abschätzungen mit einer von Bohr [13] angegebenen Reichweitenformel), so daß diese Methode im vorliegenden Fall auszuschneiden war.

Zur Erzielung einer Fabry-Perot-Aufnahme ist eine bestimmte Lichtenergie nötig. Es sollte daher gemessen werden, mit welchen kleinsten Mengen getrennter Isotope noch ausreichend belichtete HFS-Spektren photographiert werden können und wie sich diese kleinen Mengen in der Hohlkathode hinsichtlich ihres Abbrandes verhalten. Da das Strom-Zeit-Integral des Auffängerstromes wegen der Zerstäubung zunächst keine Schlüsse auf die wirklich aufgefangenen Mengen zuläßt, sollte durch Vergleich mit bekannten aufgedampften Mengen eine Eichskala geschaffen werden. Ferner mußte festgestellt werden,

ob für den Fall des Abbremsens der aufgefangenen Ionen günstigere Verhältnisse erzielt werden konnten.

Zu diesem Zweck wurden in die Hohlkathode nacheinander die Trennproben und die Vergleichsproben gebracht. Die Hohlkathode wurde stets unter gleichen Bedingungen (Druck, Stromstärke) betrieben, und durch Serienaufnahmen wurde festgestellt, wie lange und wie stark die Ag- bzw. Cu-Linien in der Entladung vorhanden sind. Die Vergleichsproben wurden durch Aufdampfen von Ag bzw. Cu im Hochvakuum auf Halbzylinder hergestellt. Dabei wurde eine Aluminiumfolie mitbedampft und anschließend gewogen, so daß die auf die Halbschalen aufgedampfte Menge errechnet werden konnte. Auf diese Weise war es möglich, die aufgefangenen Ag- bzw. Cu-Mengen bis auf einen Faktor 2 abzuschätzen. Allerdings versagt das Verfahren bei Mengen über  $100\text{ }\mu\text{g}$ , da sich dann die Unterschiede im Aufbau der aufgedampften und aufgeschossenen Schichten (Einlagerung des zerstäubten Auffängermaterials) störend bemerkbar machen.

In den Fig. 7, 8 und 9 sind einige charakteristische Ergebnisse dieser Versuche wiedergegeben. Alle Einzelheiten sind aus den Bildunterschriften zu entnehmen. Die als „aufgefangen“ bezeichneten Massenwerte sind dabei I · t-Werte.

In Fig. 7 A ist zunächst gezeigt, wie der Abbrennvorgang der Probe in der Hohlkathode in den Aufnahmen zu Tage tritt. Die Ag-Linie wird laufend schwächer, da die durch Kathodenzerstäubung in die Entladung gelangten Ag-

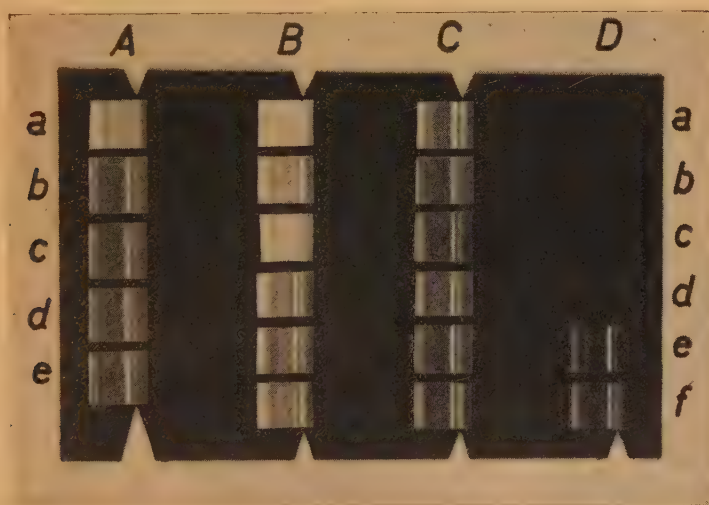


Fig. 7: A: Lichtausbeute kleiner Silbermengen;  $\lambda = 5027\text{ }\text{\AA}$ ;  $20\text{ }\mu\text{g}$  Ag aufgedampft. Belichtung: Von oben nach unten je 30 sec aneinander anschließend. Hohlkathode 100 mA; Ne 0,5 torr.

B, C, D: Spektroskopischer Vergleich verschieden aufgetragener Silbermengen ( $\lambda = 5027\text{ }\text{\AA}$ ). B) Erste Belichtung 30 sec unmittelbar nach Einschalten der Entladung (Banden-Untergrund!) C) 30 sec Belichtungsdauer nach 1 min Brenndauer. D) 30 sec Belichtungsdauer nach 2,5 min Brenndauer. Entladungsbedingungen wie unter A). Von oben nach unten bei B, C, D: a)  $40\text{ }\mu\text{g}$  aufgedampft. b)  $20\text{ }\mu\text{g}$  aufgedampft. c)  $120\text{ }\mu\text{g}$  aufgefangen auf Halbschalen, Ionen auf 100 V abgebremst. d)  $90\text{ }\mu\text{g}$  wie c nicht abgebremst (9 kV) e)  $60\text{ }\mu\text{g}$  wie d). f)  $50\text{ }\mu\text{g}$  aufgefangen in Töpfchen, Ionen von 9 kV.

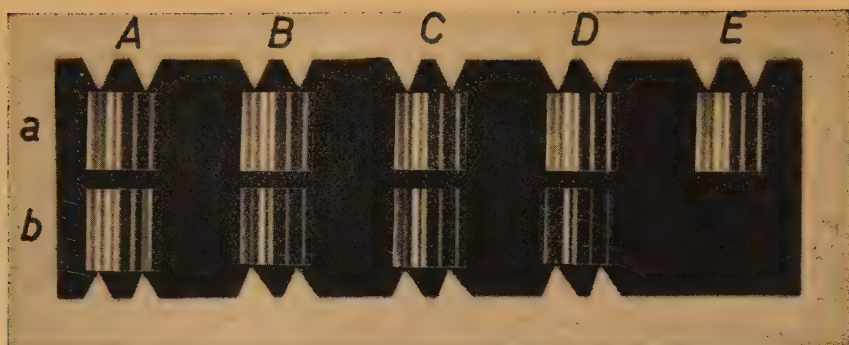


Fig. 8: Unterschiedlicher Abbrand aufgedampfter und aufgeschossener Mengen von Cu ( $\lambda = 5782 \text{ \AA}$  und  $\lambda = 5700 \text{ \AA}$ ). Zeile a:  $200 \mu\text{g}$  Ionen  $15 \text{ kV}$  im Töpfchen aufgefangen; Zeile b:  $250 \mu\text{g}$  aufgedampft;  $50 \text{ mA}$ . Belichtungszeit: je  $30 \text{ sec}$ , verteilt über ca.  $20 \text{ min}$ .

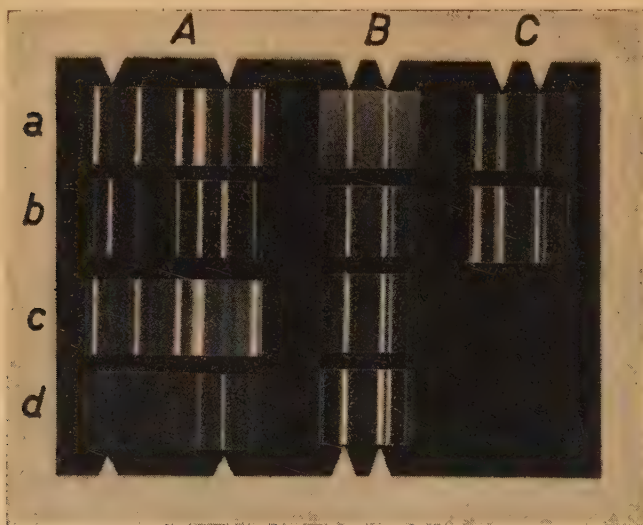


Fig. 9: Vergleich der Lichtausbeute von aufgefangenem und massivem Kupfer. A: ( $\lambda = 5700 \text{ \AA}$  und  $5782 \text{ \AA}$ ). a)  $0,3 \text{ mg}$  aufgefangen  $5 \text{ min}$ . b) massiv Cu  $10 \text{ sec}$ . c)  $1,5 \text{ mg}$  aufgefangen  $5 \text{ min}$ . d) massiv Cu  $1 \text{ sec}$ . B: massiv Cu ( $\lambda = 3247 \text{ \AA}$  und  $3274 \text{ \AA}$ ). a, b, c, d:  $1, 2, 4, 8 \text{ sec}$ . C:  $1,5 \text{ mg}$  aufgefangen ( $\lambda = 3247 \text{ \AA}$  und  $3274 \text{ \AA}$ ) a, b:  $2$  und  $5 \text{ min}$ .

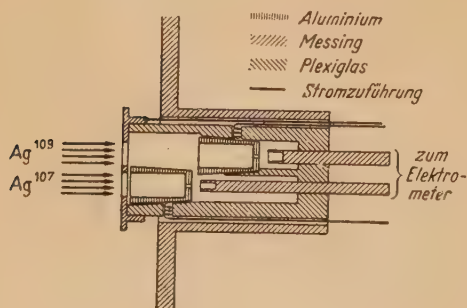


Fig. 10: Anordnung der Auffänger für die Ag-Isotope.

Atome aus dem Kathodenraum hinausdiffundieren. Aus Fig. 7 B, C, D geht die Überlegenheit des Töpfchenauffängers über die Halbzylinder selbst bei Abbremsung der Ionen deutlich hervor. Ein Vergleich der Zeilen a und f in Fig. 7 B, C, D zeigt die größenordnungsmäßige Übereinstimmung aufgedampfter und aufgefangener Mengen und daraus folgt, daß beim Töpfchenauffänger annähernd alle eingeschossenen Ionen festgehalten werden.

Fig. 8 vergleicht je etwa 200  $\mu\text{g}$  aufgedampftes (Zeile b) und in Ionenform (15 kV) aufgefangenes (Zeile a) Kupfer. Während das aufgedampfte Kupfer sofort nach Einschalten der Entladung ein intensives Cu-Spektrum gibt, das zeitlich sehr schnell in seiner Lichtstärke abnimmt, muß bei der durch Ionenbeschuß erzeugten Mischschicht („Legierung“ aus Cu und Al) die Entladung erst einige Zeit brennen, bis das Spektrum voll zur Ausbildung kommt. Dafür bleibt die Intensität der Cu-Linien viel länger gleichmäßig, obwohl kleiner als die Anfangsintensität der aufgedampften Probe.

Die Verschlechterung der Lichtausbeute bei den Trennproben durch Mischung der eingeschossenen Ionen mit zerstäubtem Auffängermaterial zeigt auch die Fig. 9. Eine Steigerung der Auffangmenge von 0,3 auf 1,5 mg bringt keine Verbesserung, da in gleichem Maße auch das Auffängermaterial stärker zerstäubt wird. Man schätzt aus diesen Aufnahmen ab, daß die Lichtausbeute der Trennproben etwa 100 mal kleiner ist als die des massiven Kupfers.

Da im Fabry-Perot der Lichtstrom um den Faktor 30 bis 100 geschwächt wird, können mit den bisherigen Trennproben nur die stärksten Linien untersucht werden, da wegen unvermeidlicher Änderungen des Fabry-Perots während der Aufnahme die Belichtungszeit auf einige Stunden beschränkt ist. Es muß deshalb in Erwägung gezogen werden, durch chemische Aufbereitung möglichst reine Schichten des getrennten Materials in der Hohlkathode zu bekommen, um die Lichtausbeute zu steigern. Die so gewonnenen Proben werden den aufgedampften Schichten nahekomen und sich entsprechend schnell verbrauchen (vgl. Fig. 8b).

Die gewonnenen Ergebnisse entschieden zu Gunsten des Töpfchenauffängers. Fig. 10 zeigt eine Skizze des Ag-Auffängers. Da der Abstand der Massen 107 und 109 auf dem Auffänger nur 9 mm beträgt, mußten die Töpfchen hintereinander angeordnet werden. Der Cu-Auffänger war ähnlich gebaut, doch konnten dabei die Töpfchen nebeneinander gesetzt werden, da der Abstand der Massen 63 und 65 etwa 16 mm beträgt.

Um eine Fälschung der Auffängerströme und der daraus berechneten Auffangmengen durch Sekundärelektronen zu vermeiden, wurden in üblicher Weise Gegenspannungskurven in einer Doppelblendenanordnung gemessen. Auf Grund dieser Versuche wurde zur Berechnung der aufgefangenen Mengen der gemessene Auffängerstrom ohne Abzug eingesetzt.

Um die Aufenthaltsdauer der Ag- bzw. Cu-Atome im Entladungsraum der Hohlkathode zu erhöhen und dadurch die Lichtausbeute zu steigern, wurde der Versuch gemacht, die Trennprobe bzw. eine Aufdampfprobe in eine Hohlkathode mit besonders tiefem Kathodenraum (maximale Tiefe 70 mm,  $\phi$  8 mm) zu bringen. Dabei zeigte sich, daß die Eindringtiefe der Entladung in den Kathodenraum kaum die Tiefe unseres Auffängertöpfchens übertrifft und — wie zu erwarten — etwas vom Druck abhängt. Auf Grund dieses Versuches wurde das Auffängertöpfchen (Fig. 6) dimensioniert.

Folgende Werte für die Eindringtiefe der Entladung in eine Hohlkathode von 8 mm  $\phi$  wurden gefunden: Neon 0,5 torr; 50 bis 100 mA Entladungsstrom; 23 mm Eindringtiefe. Neon 0,05 torr; 50 bis 100 mA Entladungsstrom; 38 mm Eindringtiefe.

#### 4. Trennung und Untersuchung der Ag-Isotope

Über die Trennung und optische Untersuchung der Ag-Isotope ist bereits an anderer Stelle berichtet worden [14]; deshalb sollen hier nur die Ergebnisse kurz zusammengefaßt werden. In 10tägiger Trennarbeit mit insgesamt 46 Trennstunden wurden etwa 0,5 mg  $^{107}\text{Ag}$  und 0,5 mg  $^{109}\text{Ag}$  aufgefangen. Die Ionenströme im Töpfchenauffänger betrugen dabei 3 bis 4  $\mu\text{A}$  je Isotop bei einer Beschleunigungsspannung von 9 kV. Die Auflösung bewegte sich während der Trennung zwischen den in Fig. 11 wiedergegebenen Stromverteilungen. Wenn man berücksichtigt, daß die wiedergegebenen Stromverteilungen infolge von Störungen (Überschlägen) im Beschleunigungssystem und Schwankungen der Betriebsbedingungen der Ionenquelle über dem Auffänger wanderten, so darf für die Reinheit der Trennproben nicht der aus den Stromverteilungskurven entnommene Wert von 97 %, sondern ein etwas niedrigerer Wert zwischen 90 und 95 % angegeben werden. Aus der photometrischen Auswertung einer Aufnahme von  $\lambda = 3267,3 \text{ \AA}$  ergibt sich für die Probenreinheit ebenfalls 90 bis 95 %.

Das Ziel der Arbeit war, an den Ag-Resonanzlinien die Komponentenzuordnung von Crawford, Schawlow, Gray und Kelly [1] nachzuprüfen, da die nach dieser Zuordnung berechnete Isotopieverschiebung stark von dem erwarteten Wert einschließlich des Vorzeichens abweicht. Das Ergebnis zeigt Fig. 12. Dort sind die Ag-Resonanzlinien der beiden Isotope nebeneinander photographiert, so daß Komponentenzuordnung und Isotopieverschiebung unmittelbar zu erkennen sind. Die sich daraus ergebende Komponentenzuordnung liefert eine Isotopieverschiebung der erwarteten Größe. Außerdem führt die neue Zuordnung zu neuen Werten der magnetischen Kernmomente des Silbers. Zahlenmäßig drücken sich die Ergebnisse der Untersuchungen folgendermaßen aus:

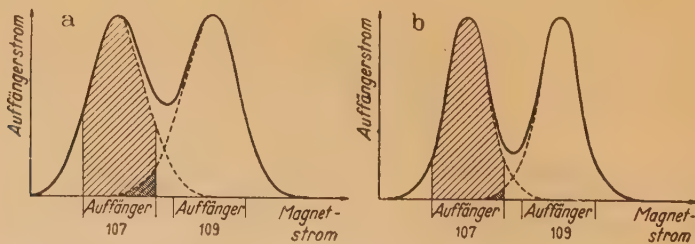


Fig. 11: Stromverteilungskurven am Auffänger bei der Ag-Trennung. a) Schlechteste, b) beste Auflösung während der Trennperiode.



Fig. 12: Fabry-Perot-Aufnahme der AgI-Resonanzlinie  $\lambda = 3281 \text{ \AA}$  mit getrennten Isotopen. Mitte: Ag 109; außen: Ag 107. Zunehmende Wellenzahl nach außen.

## Magnetische Kernmomente des Silbers:

$\mu_{100} = -0,129 \text{ KM}$ ;  $\mu_{107} = -0,111 \text{ KM}$ ; Fehlergrenze etwa  $\pm 7 \%$ .

## Isotopieverschiebung:

Kernvolumeneffekt des 5s-Elektrons:  $\Delta T(5s) = (19,5 \pm 3) \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ .

Schließlich konnte aus Aufnahmen der AgII-Linien  $\lambda = 3267,3 \text{ \AA}$  und  $\lambda = 3495,3 \text{ \AA}$  mit getrennten Isotopen das Vorzeichen der Isotopieverschiebung dieser Linien bestimmt werden. Es ergab sich eine Isotopieverschiebung im Sinne des Kernvolumeneffektes, deren Betrag schon von Rasmussen [15] gemessen worden war.

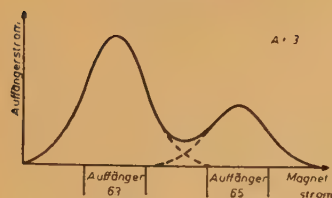
## 5. Trennung und Untersuchung der Cu-Isotope

Das CuI-Spektrum ist ein alkaliähnliches Spektrum. Auf Grund einer Systematik des Isotopieverschiebungseffektes [16] sollte man daher einen massenabhängigen Isotopieverschiebungseffekt erwarten, der auf Grund der Extrapolation der Isotopieverschiebungswerte in der Reihe LiI, MgII, KI von der Größenordnung sein sollte, welche die Theorie liefert. Ritschl [3] hat bereits vor längerer Zeit die HFS des Cu-Spektrums untersucht und konnte seine Analyse in sich einigermaßen abstimmen, wenn er weder dem Grundzustand  $3d^{10}4s^2S_{1/2}$  noch den höheren Termen des Einelektronenspektrums eine Isotopieverschiebung zuordnete, sondern nur einem Komplexterm  $3d^94s^2m^2D_{3/2,5/2}$  die extrem große Isotopieverschiebung mit dem Vorzeichen eines Kernmitbewegungseffektes von  $(72 \text{ bzw. } 85) \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$  gab. Dementsprechend dürften die Resonanzlinien keine Isotopieverschiebung, die Linien des Komplexsystems  $3d^94s^2 - 3d^94s4p$  eine Isotopieverschiebung derselben Größe erwarten lassen. Die unter dieser Annahme von Ritschl berechneten Aufspaltungsbilder schienen in einigen Fällen durch seine Messungen bestätigt zu werden, in anderen Fällen wurden die erwarteten Komponenten nicht gefunden. Ritschl selbst wies daher schon auf diese Unsicherheit in der Deutung der  $m^2D_{3/2,5/2}$ -Terme hin ([3], Fußnote S. 20).

Da die Deutung dieser Ergebnisse für die Diskussion des Kernvolumeneffektes bei mittleren Elementen von Wichtigkeit ist, haben Brix und Humbach [2] mit einer Atomstrahllichtquelle zunächst einmal die Isotopieverschiebung in den CuI-Resonanzlinien untersucht. Sie kommen zu dem Ergebnis, daß der  $^2S_{1/2}$ -Zustand eine Isotopieverschiebung von  $-(18 \pm 4) \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$  aufweist, ein Wert, der das richtige Vorzeichen hat, aber um  $-10 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$  zu groß gegenüber dem theoretischen Wert ist. Es schien deshalb und wegen des relativ großen Fehlers der Messungen gerechtfertigt, die Untersuchungen mit getrennten Isotopen noch einmal zu wiederholen und dabei gleichzeitig das Verfahren der Messung von Isotopieverschiebung durch Aufnahmeserien mit getrennten Isotopen auf seine Leistungsfähigkeit und Fehlerquellen zu untersuchen. Darüber hinaus war es notwendig, die Isotopieverschiebung in den Komplexlinien einer Untersuchung zu unterziehen, um auch hier den Ritschl'schen Befund zu prüfen.

Bei der Cu-Trennung konnte die Beschleunigungsspannung auf 15 kV gesteigert werden, und die Auffängerströme  $I_{03}$  betrugen 30 bis 40  $\mu\text{A}$ . In 10wöchiger Trennarbeit mit insgesamt 125 Trennstunden konnten etwa 6 mg

# Auflösung der Cu-Isotope



Cu 63 und 3 mg Cu 65 aufgefangen werden. Aus den Stromverteilungskurven der Fig. 13 geht hervor, daß die Auflösung der Isotope während der Trennung so gut war, daß man eine etwa 99%ige Reinheit der Trennproben erwarten könnte. Berücksichtigt man jedoch die Schwankungen der Stromverteilung über den Auffängern, so erniedrigt sich dieser Wert etwas, aber nicht unter 95 %.

Fig.13:  
Stromverteilungskurven am Auffänger bei der Cu-Trennung. A = 3 schlechteste, A = 6 beste Auflösung während der Auffangperiode.

Eine Kontrolle für die Reinheit der Proben liefert die Messung der Gesamtaufspaltung in den mit den getrennten Isotopen photographierten CuI-Resonanzlinien. Als Verhältnis der Gesamtaufspaltungen der beiden Isotope ergibt sich nach unseren Messungen  $1,068 \pm 0,0015$ . Nimmt man an, daß sich die Aufspaltungsfaktoren der beiden Isotope wie die Kern-g-Faktoren verhalten — aus Atomstrahl-Resonanzmessungen [17] ist das Verhältnis  $g_{65}/g_{63} = 1,0712$  bekannt — und erklärt die Abweichung durch Unreinheit der Trennproben, dann ergibt sich eine Probenreinheit von 97,5 %.

Die im folgenden beschriebenen Untersuchungen wurden mit nur je einer Probe von etwa 1 mg Cu 63 und 0,3 mg Cu 65 ausgeführt. Nach etwa 2stündiger Brenndauer der Proben in der Hohlkathode mit 40 mA zeigte sich noch keine merkliche Abnahme in der Intensität der Cu-Linien.

Die optische Versuchsanordnung war die gleiche wie beim Silber [14]. Durch Verschieben der Kassette des Spektrographen wurden auf jeder Platte 3 Aufnahmen untergebracht: Cu 63, Cu 65, Cu 63. Die Aufnahmedauer für eine Serie betrug etwa 1 Stunde, wobei jede Belichtung 15 bis 20 Minuten beanspruchte und noch einige Minuten für das Umschalten zwischen den Hohlkathoden mit Cu 63 bzw. Cu 65 benötigt wurden.

Durch Verwendung eines Fabry-Perot in druckdichtem Gehäuse bei möglicher Temperaturkonstanz war es möglich, die Verschiebungen im Ringsystem möglichst klein zu halten. Die trotzdem noch auftretenden Verschiebungen konnten aus einem Vergleich der beiden Cu-63-Aufnahmen entnommen und korrigiert werden. Im allgemeinen betrugen die Änderungen der Ringdurchmesser auf einer Platte nur  $(1 \text{ bis } 3) \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ ; daher konnte zur Berechnung der Korrekturen mit einem linearen Zeitgang gerechnet werden. Auf zwei Platten ergaben sich größere Verschiebungen von 9,9 bzw.  $17,3 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ . In diesen Fällen wurde der zeitliche Verlauf der Verschiebung an einer benachbarten Neon-Linie ausgemessen und eine entsprechende Korrektur an den Ringdurchmessern angebracht, wobei die Wellenlängenabhängigkeit der Änderung der Ringdurchmesser berücksichtigt wurde.

Die Ergebnisse unserer Messungen an den Resonanzlinien sind in Tabelle 1 wiedergegeben. Für die Schwerpunktverschiebung in den Linien ergeben sich folgende Mittelwerte für die Isotopieverschiebung  $\Delta s$ :

Tab. 1 Meßergebnisse an den Cu I - Resonanzlinien

| Wellenlänge<br>(ÅE) | Etalon<br>(mm) | Stromstärke<br>(mA) Druck(torr)<br>Belichtungszeit<br>(Minuten) | Fabry-Perot-<br>Wanderung<br>( $10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ ) | Gesamtaufspaltung<br>( $10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ ) |                | $\frac{B}{A}$ | $(10^{-3} \text{ cm}^{-1})$ |                                |                                  |
|---------------------|----------------|-----------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------|----------------|---------------|-----------------------------|--------------------------------|----------------------------------|
|                     |                |                                                                 |                                                            | A                                                  | B              |               | $\Delta a$                  | $\Delta b$                     | $\Delta s$                       |
| 3247                | 20             | 15; 1, 1; 15                                                    | 9,91<br>7,5<br>2,8                                         | 369,5                                              | 395            | 1,068         | + 7,25*<br>+ 9,75<br>+ 9,39 | + 33,13*<br>+ 35,65<br>+ 35,26 | + 17,0*<br>+ 19,7<br>+ 19,0      |
| 3247                | 20             | 20; 1, 1; 4                                                     | 0,75<br>0,87                                               | 371                                                | 396            | 1,067         | + 8,38<br>+ 10,4            | + 35,13<br>+ 34,5              | + 18,4<br>+ 19,5                 |
| 3247                | 18,9           | 15; 1, 1; 15                                                    | 2,75                                                       | 371,8                                              | 395            | 1,062         | + 9,02                      | + 32,25                        | + 17,7                           |
| 3247                | 18,9           | 10; 1, 1; 15                                                    | 1,83                                                       | 367,5                                              | 394            | 1,072         | + 10,00                     | + 36,3                         | + 19,9                           |
|                     |                |                                                                 |                                                            | 370<br>369,4                                       | 395<br>395,6   |               | + 9,5<br>+ 10,0             | + 34,8<br>+ 36,5               | + 19,0 $\pm$ 1<br>+ 20,0 $\pm$ 1 |
| 3274                | 18,9           | 30; 1, 1; 15                                                    | 17,33<br>10,52<br>6,42                                     | 400,8                                              | 427,3          | 1,066         | + 7,97*<br>+ 9,96<br>+ 10,1 | + 34,2*<br>+ 36,1<br>+ 36,4    | + 17,9*<br>+ 19,8<br>+ 20,0      |
| 3274                | 18,9           | 15; 1, 1; 15                                                    | 1,14                                                       | 406,2                                              | 435,6          | 1,072         | + 6,49                      | + 36,49                        | + 17,8                           |
|                     |                |                                                                 |                                                            | 403,5<br>402,8                                     | 431,5<br>432,2 | 1,068         | + 8,9<br>+ 9,4              | + 36,3<br>+ 38,2               | + 19,2 $\pm$ 3<br>+ 20,2 $\pm$ 3 |

\* Bei der Mittelwertbildung  
weggelassen.  
Fabry-Perot-Wanderung ge-  
messen an der Neon-Linie  
 $\lambda = 3323,7 \text{ ÅE}$   
5 Aufnahmen auf einer Platte  
63 Cu 65 Cu 63 Cu 65 Cu

Mittelwerte  
korrigiert auf 100 %ige Rein-  
heit der Proben.

\* Bei der Mittelwertbildung  
weggelassen.  
Fabry-Perot-Wanderung  
gemessen an der Neon-Linie  
 $\lambda = 3309,78 \text{ ÅE}$

Mittelwerte  
Korrigiert auf 100 %ige Rein-  
heit der Proben.

Anmerkung: Die Fabry-Perot-Wanderung bewirkt in allen Fällen eine Verkleinerung der Ringdurchmesser.

In den Zahlenangaben für  $\Delta a$  und  $\Delta b$  ist die Korrektur für die Fabry-Perot-Wanderung bereits enthalten. Bei der Korrektur für die Verunreinigung durch das andere Isotop ist die Reinheit der Trennprobe zu 97,5 % bei beiden Isotopen eingesetzt worden.

In der dritten Spalte sind die Entladungsstromstärke und der Neon-Druck in der Hohlkathode sowie die Belichtungszeit für ein Isotop angegeben.

Das Vorzeichen der Verschiebungen bedeutet, daß die Komponenten in der Linie bei dem schweren Isotop nach größeren Wellenzahlen verschoben sind. (Kernmitbewegungseffekt).

$$(1) \lambda = 3247,5 \text{ \AA} (4s^2S_{1/2} - 4p^2P_{3/2}): \Delta s = (20,0 \pm 1) \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$$

$$(2) \lambda = 3274,0 \text{ \AA} (4s^2S_{1/2} - 4p^2P_{1/2}): \Delta s = (20,2 \pm 3) \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$$

Bezieht man die Isotopieverschiebung des CuI-Grundzustandes auf  $4p^2P_{1/2}$ , so erhält man aus (2) für die Termverschiebung  $\Delta T$ :

$$\Delta T(^2S_{1/2}) = -(20,2 \pm 3) \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$$

Übernimmt man für die Isotopieverschiebung im  $^2P_{3/2}$ -Zustand den nach Schüler und Schmidt [19] von Brix errechneten Wert  $1 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$  (siehe [18]), so ergibt sich aus (1):

$$\Delta T(^2S_{1/2}) = -(19,0 \pm 1) \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$$

Die Werte stimmen in sich und mit dem von Brix und Humbach [3] angegebenen Wert  $\Delta T(^2S_{1/2}) = -(18,0 \pm 4) \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$  gut überein. Das Vorzeichen ist das des Kernmitbewegungseffektes. Die Fehlergrenze ist bei  $\lambda = 3274 \text{ \AA}$  etwas größer angegeben, da zur Auswertung nur 2 Aufnahmen mit 18,9 mm Etalon zur Verfügung standen und außerdem die Komponenten dieser Linie breiter sein sollten als bei  $\lambda = 3247,5 \text{ \AA}$  (s. Fig. 14). Die Fehlergrenze wird wesentlich bestimmt durch die Einstellfehler beim Vermessen der Strukturen unter dem Komparator. Bei den CuI-Resonanzlinien ist dieser Fehler besonders groß wegen der unaufgelösten Struktur der einzelnen Komponenten (vgl. Fig. 14).

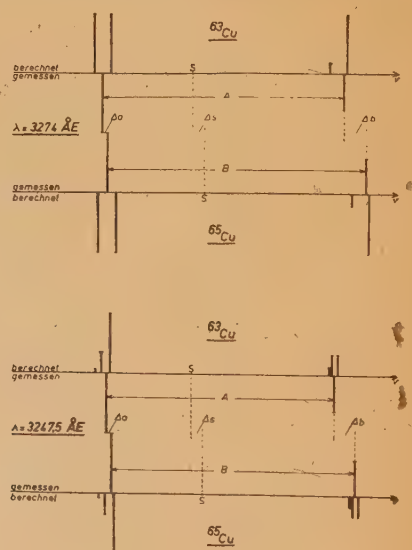


Fig. 14:  
Aufspaltungsbilder der CuI-Resonanzlinien.

Fig. 15:

Fabry-Perot-Aufnahmen der CuI-Resonanzlinien  $\lambda = 3274 \text{ \AA}$  (b) und  $\lambda = 3247 \text{ \AA}$  (a). Die Aufnahmen sind ausgeschnitten und nebeneinander aufgeklebt. Mitte Cu 65, außen Cu 63. Etalonabstand 18,9 mm.

In Fig. 14 sind die Ausspaltungsbilder der CuI-Resonanzlinien und die in Tab. 1 angegebenen Meßgrößen eingetragen. Fig. 15 zeigt Reproduktionen der gewonnenen Aufnahmen. Die CuI-Resonanzlinien sind ausgeschnitten und nebeneinander aufgeklebt. Die Isotopieverschiebung ist besonders an den schwachen Komponenten gut zu erkennen. Außerdem wird deutlich, daß mit ungetrenntem Cu die Komponenten der beiden Isotope nicht aufgelöst werden können. Die entsprechende Ag-Aufnahme (Fig. 12) zeigt schärfere Komponenten, da die Dopplerbreite kleiner ist.

Weiterhin haben wir die Isotopieverschiebung an vier Linien ( $\lambda = 3194, 3208, 3279, 3530 \text{ \AA}$ ), die zu den Übergängen  $3d^9 4s^2 m^2 D \rightarrow 3d^9 4s 4p a^4 D, a^2 F, a^4 F$  gehören, mit unseren getrennten Isotopen gemessen und in allen 4 Fällen im Gegensatz zu Ritschl den Wert von  $(20 \pm 4) \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$  an den Linien gefunden, also Kernmitbewegungseffekt derselben Größe wie in den Resonanzlinien. Im einzelnen sind die Ergebnisse aus Tab. 2 zu entnehmen. Da an jeder Linie jeweils nur die stärkste Komponente hinreichend genau vermessen werden konnte, mußte für die Schwerpunktsverschiebung eine Korrektur wegen der verschiedenen Aufspaltungsfaktoren von Cu 63 und Cu 65 angebracht werden.

Bisher ist also über die Isotopieverschiebung im Cu-Spektrum folgendes sichergestellt:

1. In den Resonanzlinien (3d-Schale bei beiden Termen voll besetzt) beträgt die Isotopieverschiebung  $(18 \text{ bzw. } 19) \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ .

2. In den zuletzt beschriebenen Linien (3d-Schale bei beiden Termen angebrochen) beträgt die Isotopieverschiebung etwa  $20 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ .

3. Bei den Linien  $\lambda = 5700 \text{ \AA}$  und  $\lambda = 5782 \text{ \AA}$  (Übergang zwischen der voll besetzten und der angebrochenen 3d-Schale) steigt die Isotopieverschiebung auf  $76 \text{ bzw. } 74) \cdot 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$  [nach 19].

Der offensichtliche Widerspruch zwischen der Ritschlschen Annahme, die seiner Analyse zu Grunde liegt, und unseren Messungen zwingt zu einer Überprüfung sämtlicher Übergänge des Komplextermsystems mit getrennten Isotopen. Es liegt zwar die Vermutung nahe, der angebrochenen 3d-Schale einen besonders großen Kopplungseffekt zuzuschreiben — was mit dem bisherigen Ergebnis nicht im Widerspruch steht — doch wäre ein solcher Schluß verfrüht. Die Klärung muß einer weiteren Arbeit vorbehalten bleiben.

Für die Anregung zu dieser Arbeit, für wertvolle Hinweise und großes Interesse an der Durchführung bin ich Herrn Professor Dr. W. Walcher zu großem Dank verpflichtet. Herrn Professor Dr. H. Kopfermann danke ich in gleichem Maße für sein Interesse an dieser Arbeit und dafür, daß ich am II. Physikalischen Institut der Universität Göttingen die optischen Untersuchungen ausführen durfte. Bei diesen Untersuchungen haben mich die Herren Dr. P. Brix und Dr. A. Steudel mit ihrer großen spektroskopischen Erfahrung in dankenswerter Weise unterstützt. Bei der zehnwöchigen Arbeit der Cu-Trennung hat mir Herr Dipl.-Phys. S. Wagner zur Seite gestanden, wofür ich ihm an dieser Stelle nochmals danken möchte.

Für Überlassung einiger Geräte danke ich der Deutschen Forschungsgemeinschaft. Ganz besonders danke ich der Isabellenhütte KG Dillenburg für ein Stipendium, das mir erst die Durchführung dieser Arbeit ermöglichte.

Tab. 2 Meßergebnisse an Linien des  $3d^9$ -Termssystems

| Wellenlänge<br>(ÅE) | Übergang                                         | Etalon<br>(mm) | Stromstärke<br>(mA) Druck(torr)<br>Belichtungszeit<br>(Minuten) | Fabry-Perot-<br>Wanderung<br>( $10^{-3}$ cm $^{-1}$ ) | Gemessene Ver-<br>schiebung der<br>starken<br>Komponenten<br>( $10^{-3}$ cm $^{-1}$ ) | Umrechnungs-<br>glied auf Linien-<br>schwerpunkt<br>( $10^{-3}$ cm $^{-1}$ ) | Schwerpunkts-<br>verschiebung<br>in der Linie<br>( $10^{-3}$ cm $^{-1}$ ) |
|---------------------|--------------------------------------------------|----------------|-----------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------|
| 3194                | $3d^9 4s^2 m^2 D_{2/3} - 3d^9 4s 4p a^4 D_{3/2}$ | 12,5           | 40; 1, 1; 20                                                    | 1,88                                                  | + 20                                                                                  | + 9                                                                          | + 19                                                                      |
| 3208                | $3d^9 4s^2 m^2 D_{2/3} - 3d^9 4s 4p a^4 D_{5/2}$ | 12,5           | 40; 1, 1; 20                                                    | 2,91                                                  | + 23                                                                                  | — 2                                                                          | + 21                                                                      |
| 3279                | $3d^9 4s^2 m^2 D_{2/3} - 3d^9 4s 4p a^2 F_{5/2}$ | 18,9           | 30; 1, 1; 15                                                    | 10,5                                                  | + 20                                                                                  | + 3                                                                          | + 23                                                                      |
|                     |                                                  | 18,9           | 30; 1, 1; 15                                                    | 6,4                                                   | }                                                                                     | + 3                                                                          | + 21                                                                      |
|                     |                                                  | 12,5           | 40; 1, 1; 20                                                    | 6,37                                                  |                                                                                       | + 3                                                                          | + 17                                                                      |
| 3530                | $3d^9 4s^2 m^2 D_{2/3} - 3d^9 4s 4p a^4 F_{5/2}$ | 12,5           | 50; 1, 1; 20                                                    | 3,36                                                  | + 11                                                                                  | + 6                                                                          |                                                                           |
|                     |                                                  |                |                                                                 |                                                       |                                                                                       |                                                                              | + 20 $\pm$ 4                                                              |
|                     |                                                  |                |                                                                 |                                                       |                                                                                       |                                                                              | Mittelwert                                                                |

Fabry-Perot-  
Wanderung ge-  
messen an der  
Neon-Linie  
 $\lambda = 3309,78$  ÅE

Anmerkung: In der vierten Spalte sind die Entladungsstromstärke und der Neon-Druck in der Hohlkathode sowie die Belichtungszeit für ein Isotop angegeben.

Die Umrechnung auf die Schwerpunktsverschiebung wurde mit den bei Ritschl [3] angegebenen Zahlenwerten ausgeführt.

Das Vorzeichen der Verschiebung bedeutet, daß die Komponenten in der Linie bei dem schwereren Isotop nach größeren Wellenzahlen verschoben sind.  
(Kernmitbewegungseffekt).

#### Literatur:

- [1] Jackson, D.A. u. H. Kuhn: Proc. Roy. Soc. Lond. Ser. A **158**, 372 (1937). Crawford, M. F., A. L. Schawlow, M. G. Gray u. F. M. Kelly, Phys. Rev. **75**, 1112 (1949).
- [2] Brix, P. u. W. Humbach, Z. Physik **128**, 506 (1950).
- [3] Rischl, R., Z. Physik, **79**, 1 (1932).
- [4] Walcher, W., Z. Physik **108**, 376 (1938).
- [5] Walcher, W., Z. Physik **122**, 62 (1944).
- [6] Heil, H., Z. Physik **120**, 212 (1943).
- [7] z. B. E. W. Becker, E. Dörnenburg u. W. Walcher, Z. Angew. Physik **2**, 261, (1950); W. Paul, Z. Physik **124**, 244 (1948).
- [8] Bernas, R. H. u. A. O. Nier, Rev. Sci. Instr. **19**, 895 (1948).
- [9] Vgl. H. D. Smyth. Atomic Energy for Military purposes, Princeton N. J. 1946.
- [10] Walcher, W., Z. Physik **122**, 401 (1944); H. Kopfermann u. W. Walcher, Z. Physik **122**, 465 (1944).
- [11] W. R. Smythe u. a., Phys. Rev. **45**, 724 (1934); **51**, 178 (1937).
- [12] Koch, J., Nature **161**, 566 (1948).
- [13] Bohr, N., Dan. Mat. Fys. Medd. **18**, no. 8 (1948).
- [14] Brix, P., H. Kopfermann, R. Martin u. W. Walcher, Z. Physik **130**, 88 (1951).
- [15] Rasmussen, E., Dan. Mat. Fys. Medd. **18**, no. 5 (1940).
- [16] Brix, P. u. H. Kopfermann, Festschrift zur Feier des 200jährigen Bestehens der Akademie der Wissenschaft in Göttingen, 1951. Math. Phys. Klasse.
- [17] Zimmermann. J. R. u. D. Williams, Phys. Rev. **76**, 350 (1949).
- [18] Brix, P., Z. Physik **126**, 725 (1949).
- [19] Schüler, H. u. Th. Schmidt, Z. Physik **100**, 113 (1936).

## Lebenslauf

Am 4. März 1925 wurde ich, Rudolf Martin, in Neusalz (Oder), Kreis Freystadt in Niederschlesien geboren. Meine Eltern sind der Gärtnereibesitzer Richard Martin und seine Ehefrau Selma geb. Reimann. Ich bin evangelischer Konfession und besitze die deutsche Staatsangehörigkeit.

Von 1931 bis 1935 besuchte ich die ev. Volksschule in Neusalz (Oder) und ging dann auf die dortige Städtische Oberschule über. Am 27. 3. 1943 legte ich die Reifeprüfung ab. Nach anschließender vierteljähriger Arbeitsdienstzeit wurde ich aus gesundheitlichen Gründen vom Wehrdienst zurückgestellt und begann mit dem Wintersemester 1943/44 das Studium der Physik an der Friedrich-Wilhelms-Universität in Breslau. Das Kriegsende brachte mich nach Westdeutschland, und mit dem Wintersemester 1945/46 setzte ich das Studium an der Philipps-Universität in Marburg fort. Am 31. Dezember 1949 legte ich die Diplomprüfung für Physik ab und exmatrikulierte anschließend. Seit dieser Zeit war ich am Physikalischen Institut der Universität Marburg mit der Durchführung der Dissertation beschäftigt.

Meine akademischen Lehrer waren

an der Friedrich-Wilhelms-Universität in Breslau die Herren:

Feigl, Kliefoth, Julius Meyer, Radon, Clemens Schaefer, Steubing,

an der Philipps-Universität in Marburg die Herren:

Flügge, Grüneisen, Hettner, Hückel, Jost, Krafft, Laves, Mahr, Meerwein, Neumann, Reidemeister, Theile, Vogt, Walcher.